HOLLOW-FIBER MEMBRANE MODULE AND OPERATION METHOD THEREOF

Patent number:

JP2000037616

Publication date:

2000-02-08

Inventor:

SAKAI KENJI; TANIGUCHI MASAHIDE

Applicant:

TORAY INDUSTRIES

Classification:

- international: B01D63/00; B01D63/02; B01D65/02; C02F1/44;

B01D63/00; B01D63/02; B01D65/00; C02F1/44; (IPC1-

7): B01D63/02; B01D63/00; B01D65/02; C02F1/44

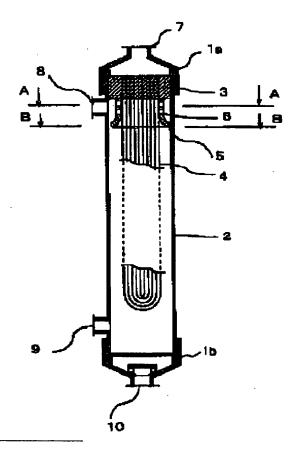
- european:

Application number: JP19980207694 19980723 Priority number(s): JP19980207694 19980723

Report a data error here

Abstract of JP2000037616

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a hollow-fiber membrane module and an operation method of the module capable of efficiently preventing hollow-fiber membrane rupture due to exceeding vibration of the hollow-fiber membranes in the case air scrubbing is carried out. SOLUTION: In a hollow-fiber membrane module comprising a large number of hollow-fiber membranes of which at least one end parts are stuck and fixed and installed in a housing, a protective member 5 surrounding at least a part of the circumference of the hollow-fiber membranes 4 is installed in a position of the circumference of the hollow-fiber membranes 4 besides the stuck and fixed parts. The protective member 5 satisfies the following relation; 0.65<=a/b<=0.9 wherein (a) stands for crosssection area of the minimum inner circumference of the protective member 5 and (b) stands for the cross-section area of the inner circumference of the end parts on the opposite to the stuck and fixed parts 3 of the protective member 5.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号 特開2000-37616 (P2000-37616A)

(43)公開日 平成12年2月8日(2000.2.8)

(51) Int.Cl. ⁷		識別記号	FΙ			テーマコート゚(参考)
B01D	63/02		B01D	63/02		4D006
	63/00	500		63/00	500	
	65/02	5 2 0		65/02	520	
C 0 2 F	1/44		C 0 2 F	1/44	Н	

0021 1/4		C02F 1/44 H
	· .	審査請求 未請求 請求項の数5 OL (全 7 頁)
(21)出願番号	特顯平10-207694	(71)出願人 000003159 東レ株式会社
(22)出顧日	平成10年7月23日(1998.7.23)	東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号 (72)発明者 酒井 憲司 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株 式会社滋賀事業場内 (72)発明者 谷口 雅英 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株 式会社滋賀事業場内 Fターム(参考) 4D006 GA02 HA03 HA06 HA19 JA10A JA10B JA25B JA25C JA29A JA29B JA31A JB06 KC02 KC14 MA01 MA22 MC18 MC22 MC33 MC39 MC62

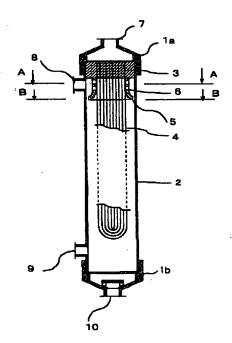
(54) 【発明の名称】 中空糸膜モジュールとその運転方法

(57)【要約】

【課題】エアースクラビングを実施する場合に、中空糸膜の過剰な揺れによる中空糸膜切れを効果的に防止する ことができる中空糸膜モジュールとその運転方法を提供 する。

【解決手段】少なくとも片方の端部で接着固定された部分を有する多本数の中空糸膜がハウジングに装填された中空糸膜モジュールにおいて、前記接着固定部近辺における前記接着固定された部分以外の中空糸膜の周りの位置に、該中空糸膜の周りの少なくとも一部を取り囲む保護部材を設け、該保護部材は、該保護部材の最小の内周での横断面積 a と該保護部材の前記接着固定部と反対側の端部の内周での横断面積 bが、0.65≦a/b≦0.9であることを特徴とする中空糸膜モジュール。

図1



【特許請求の範囲】

【請求項1】少なくとも片方の端部で接着固定された部分を有する多本数の中空糸膜がハウジングに装填された中空糸膜モジュールにおいて、前記接着固定部近辺における前記接着固定された部分以外の中空糸膜の周りの位置に、該中空糸膜の周りの少なくとも一部を取り囲む保護部材を設け、該保護部材は、該保護部材の最小の内周での横断面積aと該保護部材の前記接着固定部と反対側の端部の内周での横断面積bが、0.65≦a/b≦0.9であることを特徴とする中空糸膜モジュール。【請求項2】前記保護部材の最小の内径横断面積の部分における中空糸膜の充填率c(%)が、30≦c≦55であることを特徴とする請求項1記載の中空糸膜モジュール。

【請求項3】前記保護部材における接着固定部と反対側の端部の外周の長さcと、前記接着固定部と反対側の端部の外周の長さc(m m)と同平面でのハウジングの内周の長さd(m m)が、 $4 \le d - c \le 40$ であることを特徴とする請求項1記載の中空糸膜モジュール。

【請求項4】前記請求項1~3のいずれかに記載の中空 20 糸膜モジュールが、少なくともろ過およびエアースクラ ビングを含む方法で使用されることを特徴とする中空糸 膜モジュールの運転方法。

【請求項5】前記請求項1~3のいずれかに記載の中空 糸膜モジュールが、中空糸膜の外表面から中空部にろ過 させるものであることを特徴とする中空糸膜モジュール の運転方法。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、流体のろ過操作を 30 行うための中空糸膜モジュールに関する。

[0002]

【従来の技術】従来から飲料水や一般の工業用水の浄化 方法として、凝集沈殿および砂ろ過などの方法により、 水中のSS成分、微粒子、ゴミ、細菌類、藻類などの濁 質精分を除去する方法が取られてきている。近年は、こ れらの水中混入成分を除去するための方法として、膜を 用いたろ過が注目されている。特に多孔質の中空糸膜を モジュール化したものは、単位体積当たりの膜面積を多 くとれることから、従来から多くの形態の中空糸膜モジ ュールが提案されており、様々な分野に適用されてい る。

【0003】 これらの中空糸膜モジュールの初期のものとしては、適度な前処理手段と組み合わせて使用されるろ過モジュール、逆浸透ろ過を目的としたもの、透析用途を目的としたものなどがあり、これらの用途を主目的として、多くのモジュール形態が提案されている。その一つの形態として、特開昭61-263605号公報は、中空糸膜をU字型に束ね、それを保持する形状保持材と共に組み込み、容器に収納して使用するものであ

2

り、定期的に容器の下部に設けられたエアー導入口からエアーを導入させてエアースクラビングにより中空糸膜を振動させ、膜面の堆積物の除去を試みるものである。 【0004】しかし、上記のようなモジュールにおいては、モジュール内に導入したエアーが接着固定部付近の中空糸膜を過剰に揺動させてしまうために、中空糸膜の損傷を発生させ、またモジュール内に導入されたエアーを排出するノズルへの中空糸膜の引き込まれを発生させていた。

10 【0005】そこで、近年では、実開昭63-1680 05号のように、接着固定部付近の中空糸膜束を円筒形 の保護部材で包むととで中空糸膜の自由度を低減させ、 エアーおよび濃縮水を排出するノズルへの中空糸膜の引 き込まれを防止するものなどが提案されている。

[0006]

【発明が解決しようとする課題】しかし、上記のモジュールにおいては、エアースクラビングを実施する場合に、保護部材により接着固定部付近の中空糸膜の揺動を低減させることで、接着固定部付近の中空糸膜の損傷を防止する反面、接着固定部と反対側の保護部材の端部に揺動した中空糸膜が接触するため、中空糸膜の特定の部分に保護部材との摩擦による損傷やせん断力による損傷が発生する可能性が高かった。そこで、接着固定部付近の中空糸膜の損傷をモジュール内に設置する保護部材で防ぎ、かつこの保護部材による中空糸膜の損傷を防ぐことのできる構造の保護部材の開発が求められていた。

【0007】本発明の目的は、エアースクラビングを実施する場合に、中空糸膜の過剰な揺れによる中空糸膜切れを効果的に防止することができる中空糸膜モジュールとその運転方法を提供することにある。

[0008]

【課題を解決するための手段】上記の本発明の目的は、少なくとも片方の端部で接着固定された部分を有する多本数の中空糸膜がハウジングに装填された中空糸膜モジュールにおいて、前記接着固定部近辺における前記接着固定された部分以外の中空糸膜の周りの位置に、該中空糸膜の周りの少なくとも一部を取り囲む保護部材を設け、該保護部材は、該保護部材の最小の内周での横断面積 a と該保護部材の前記接着固定部と反対側の端部の内周での横断面積 bが、0.65≦a/b≦0.9であることを特徴とする中空糸膜モジュールにより基本的に達成される。

[0009]

【発明の実施の形態】以下、図面に示す実施例に基づいて本発明をさらに詳しく説明する。

【0010】図4、図5は従来の中空糸膜モジュールの 一例を示す側面概略図である。

【0011】中空糸膜モジュールの構造は、その運転方法により様々な形状があるが、その一例として図4に示 50 したようなハウジング2に中空糸膜4をU字状に折り曲 10

30

40

3

げてその片端部を樹脂で接着固定し、該接着固定部3の 端部で中空糸膜が開口した形状が挙げられる。

【0012】この中空糸膜モジュールを使用した運転の一例としては、まずノズル8および9を開にして、原水をノズル9からモジュール内に導入し、原水がモジュール内に充填した時点でノズル8を締め切り、ろ過を開始する。ろ過は、原水を中空糸膜4でろ過し、ろ過されたろ過水が中空糸膜4の内部を通り、ノズル7からモジュール外へ排出される。ろ過を長時間行っていると膜面に濁質が付着していくために、ろ過を停止し洗浄を行う。その一例としてエアースクラビングがあり、ノズル8および10を開にしてエアーをノズル10からモジュール内に導入し、中空糸膜を揺らし、中空糸膜同士を擦りわせることによって膜面の濁質を除去する。その後、ノズル10からのエアー導入を停止して、該ノズル10からモジュール内の濁質を含んだ排水を排出する、が挙げられる。

【0013】このような運転方法で用いられるモジュールにおいては、エアースクラビング時にエアーをノズル10からモジュール内に導入し、ノズル8からエアーを排出する際にノズル8周辺のエアー及びエアーと原水が混ざった固液混合の流体が高速流となって排出されるために、ノズル8周辺の中空糸膜に過大な負荷を与えてしまい、中空糸膜に損傷を起こしやすいという問題がある。特に、中空糸膜4の接着固定部3との境で応力が集中しやすいため、この境界での損傷が多くを占めている。

【0014】しかし図4におけるモジュールにおいては、ノズル8付近の中空糸膜4を取り囲む保護部材5を設けることで、エアースクラビング時にエアーの排出によって発生するノズル周りの高速流で、接着固定部3付近の中空糸膜4がせん断力による損傷を受けることを防止することができる。これは、中空糸膜の過剰な揺れやノズル8への引き込まれを保護部材5で中空糸膜の外周をある程度拘束することにより防止するためである。しかし、このような構造においては、流体のせん断力による損傷を低減させる反面、中空糸膜4と保護部材5の接触、特に保護部材5の接着固定部3の反対側の端部と中空糸膜4とが接触することで中空糸膜に損傷が発生しやすいという問題があった。

【0015】また、図5は、接着固定部3付近のハウジング2内径を小径にすることで中空糸膜4の過剰な揺れがおきないようにし、小径となっている部分の端部を外側に開くことで本来のハウジング内面に合わせている。しかしこのような構造では、新たなハウジングを製作する必要があり、従来からあるモジュールの改良を行うには、コスト的な面からデメリットが大きい。本発明者らは、この中空糸膜モジュールにおいて、接着固定部付近の中空糸膜の揺れの抑制とエアー排出口への中空糸膜の引き込まれを防止し、中空糸膜が接着固定部と反対側の引き込まれを防止し、中空糸膜が接着固定部と反対側の

4

保護部材の端部に接触したときの損傷を防止すべく、鋭 意検討を行った結果、本発明を見出したものである。 【0016】図1は本発明にかかる中空を障チジュール

【 0 0 1 6 】図 1 は本発明にかかる中空糸膜モジュールの一例を示す側面概略断面図である。

【0017】本発明による中空糸膜モジュールは、ハウジング2に、少なくとも一端が樹脂で接着固定された多本数の中空糸膜4と、該接着固定された部分以外の中空糸膜の周りの位置に、該中空糸膜の周りの全部もしくは少なくとも一部を取り囲む保護部材5を有しており、この保護部材5の最小の内周での横断面積aと該保護部材の該接着固定部と反対側の端部の内周での横断面積bが、 $0.65 \le a/b \le 0.9$ であることによって、保護部材5の接着固定部3の反対側の端部と中空糸膜との接触による損傷を防止できることを見出した。

【0018】本発明の中空糸膜モジュールは、多本数の多孔質中空糸膜4をハウジング2内に装填し、中空糸膜の少なくとも一端は樹脂により接着固定された接着固定部3を有し、該接着固定された部分以外の中空糸膜の周りの少なくとも一部を取り囲む保護部材5を有している構造で、モジュール内に固液混合の液体を導入し、中空糸膜面によって固液分離を行うことのできる構造であるならば特にその形状は限定されないが、多孔質中空糸膜の少なくとも一端と保護部材とを接着剤で接着固定するととともに、この接着固定部3の一部を切断して中空糸膜4の内部を開口した構造が通常一般的である。なお、前記中空糸膜の接着固定部3の部分がハウジング2に一体に接着固定されている。

【0019】なお、保護部材5は、接着固定部3付近の中空糸膜4の周りの位置に設置されるが、その設置方法は、基本的には接着固定部で固定する方法が一般的ではあるが、例えば保護部材をはじめからハウジングに固定しておいてもよい。その場合でも保護部材の一部は接着固定部の内部に埋設されていることが好ましい。

【0020】また、ハウジングの両端に中空糸膜との流体のやり取りを容易にするためにノズルが設置されたキャップ1 a および1 b を取付けた構造も好ましい。また、モジュールに設置するノズルの数については特に限定されず、モジュールの使用方法により便宜選択するととができる。また、ノズルが設置される位置も特に限定されないが、本発明の効果は、接着固定部3の付近にノズルが設置してあるモジュールについてその効果が大きし

【0021】この構造においては、中空糸膜4をハウジング2内に直線状に配置し、ハウジング2に中空糸膜4の一端、もしくは両端を樹脂で固定したものや、図1のように、中空糸膜4をU字状に束ねてハウジング2に一端を固定したものがあげられる。

は、この中空糸膜モジュールにおいて、接着固定部付近 【0022】また、本発明の中空糸膜モジュールを構成の中空糸膜の揺れの抑制とエアー排出口への中空糸膜の するハウジング2の大きさは特に限定されないが、ハウ引き込まれを防止し、中空糸膜が接着固定部と反対側の 50 ジング径50~200mm程度で長さ500~2000

6

mmの範囲から選択するのが好ましい。またこのハウジング2の材質としては、金属、プラスチック類の適当な材質のものから適宜選定することができる。また好ましくはアクリル樹脂、塩化ビニル樹脂、ボリスルホン、変形ポリフェニレンオキサイド、ポリカーボネート樹脂などが適当である。

【0023】また本発明の中空糸膜モジュールを構成する中空糸膜4としては、多孔質の中空糸膜であれば、特に限定しないが、ボリエチレン、ボリプロピレン、ボリスルホン、ボリエーテルスルホン、ボリビニルアルコー 10ル、セルロースアセテート、ポリアクリロニトリル、その他の材質を選択することができる。

【0024】ハウジングと中空糸膜との間を液密に仕切る接着固定部3を形成する接着剤については、特に限定されないが、好ましくはエポキシ樹脂、ウレタン樹脂などの熱硬化性樹脂が好ましい。

【0025】本発明における保護部材5の形状としては、接着固定部3などによって固定された部分以外の中空糸膜の少なくとも一部の外周部を囲むことができる図1もしくは図3のような形状のものであれば特に限定さ20れないが、保護部材5の内面がなめらかな曲面もしくは6つ以上の平面の組合わせにより構成されたものが好ましい。このような形状により、保護部材5の内面と中空糸膜4との接触による中空糸膜の損傷を低減することができる。

【0026】また本発明の保護部材5が、保護部材の最小の内周での横断面積 a と、保護部材の接着固定部と反対側の端部の内周での横断面積 b が、0.65≦a/b≦0.9であることで中空糸膜の損傷を更に低減することができる。

【0027】内周とは、保護部材5と、中空糸膜4と垂直に交わる平面とによってできる保護部材内面の曲線のことを指す。ここで、保護部材5の最小の内周での横断面積とは、上記に定義した内周で最も小さい内周に囲まれた面積を指し、例としては図1のA-A断面を示した図2の(A)の保護部材5に囲まれた面積を示すことができる。また、保護部材の接着固定部と反対側の端部の内周での横断面積6とは、図1のB-B断面を示した図2の(B)の保護部材5に囲まれた面積を表す。

【0028】上記の条件内であれば、保護部材の形状は特に限定されない。例えば保護部材5の中空糸膜束と垂直方向の断面が円形である場合には、接着固定部3側の端部から反対側の端部まで一定の角度で広がっていく円錐形状のものなどが挙げられる。好ましくは、図1に示した接着固定部の反対側の端部だけが外側に開いている形状や、図3に示した保護部材の中央部が細くくびれた形状などが挙げられる。

【0029】保護部材5の側面には、モジュール内に導保護部材における接着固定部と反対側の端部の外周の入された供給原水、およびエアーがモジュール外に排出 さっと接着固定部と反対側の端部の内周の長さ c0m0 と同平面でのハウジングの内周の長さ d0m0

よび数については特に限定されないが、好ましくは、エアーおよび供給原水とともに孔に引き込まれない程度の孔の大きさであるのが好ましい。例えば、図1のA-A断面において10cm/secでエアーをモジュール内に導入する時には、孔の大きさを直径3mm以上10mm以内程度で孔の総面積が10~80cm2程度となるように設置することを例示できる。また孔の配される位置についても、特に限定されないが保護部材の周方向に均等に配されるのが適当である。孔の配される位置については、エアーおよび供給原水が排出される接着固定部付近のノズル8などに面している部分に設けないことも、ノズル方向への中空糸の引き込まれを防止するのに効果的である。

【0030】保護部材5の材質としては、特に限定されないが、好ましくはアクリル樹脂、塩化ビニル樹脂、ポリスルホン、変形ポリフェニレンオキサイド、ポリカーボネート樹脂などが適当である。

【0031】本発明の保護部材5は、保護部材の最小の 内径での横断面積の部分における中空糸膜の充填率 c

(%) が $30 \le c \le 55$ のときに効果が大きい。充填率とは、例えば、図1の保護部材の最小の内径での横断面を示した、A-A断面図の図2(A)の保護部材5内の面積に対する、この保護部材5内に納められた中空糸が占有する面積の割合を指す。

【0032】充填率が30%以下である場合には、中空 糸膜の自由度を低減することが不十分であり、また55 %以上となる場合には、供給原水やエアーなどの流体の 流入を妨げる。特に、55%以上の時には、中空糸膜が ほとんど揺れない状態になるため中空糸膜に付着した濁 30 質が除去されないといった問題が発生する。

【0033】この保護部材5とハウジング2には、保護 部材5における接着固定部と反対側の端部の外周の長さ cと同平面でのハウジングの内周の長さd (mm)が、 4≤d-c≤40、となるような間隙が設けられる。と れは、図1を例にとれば、保護部材5の接着固定部と反 対側の端部を示したB-B断面、つまり図2(B)の保 護部材5の外径の長さがcであり、またB-B断面のハ ウジング1の内径の長さが d である。例えば、エアー流 量が少ない場合には、モジュール内に導入されたエアー 40 の多くが保護部材の内側に導入される方がエアースクラ ビングによる洗浄性が増すが、エアー量が多い場合に は、多量のエアーにより中空糸膜を損傷する原因とな る。しかし、エアー量が多い場合にもd‐c≧40mm 以上の間隙を開けると保護部材の外に多量のエアーが流 れてしまい、洗浄性を悪くする。好ましくは、図1のB - B断面でのハウジング断面積において10cm/se cのエアー流量でエアースクラビングを実施する場合、 保護部材における接着固定部と反対側の端部の外周の長 さcと接着固定部と反対側の端部の内周の長さc(m

8

が、d-c=20mm程度の間隙を設けるのが適当である。

【0034】本発明の中空糸膜モジュールの効果は、いずれの運転方法によるモジュールにおいても得られることができるが、特にエアースクラビングの行程を含む運転方法で用いられるモジュールで大きな効果が得られる。エアースクラビングは、強制的に中空糸膜を揺動させることで膜面の付着物を除去する方法であるため、中空糸膜4の揺れが大きく、保護部材5との接触による損傷の可能性が大きい。

【0035】また、本発明の中空糸膜モジュールの効果は、中空糸膜の外表面から中空部にろ過させる外圧方式である時に効果が大きい。

[0036]

【実施例】実施例1

外径680μm、外径400μm、平均ボアサイズ0.01μmのポリアクリロニトリル多孔質中空糸膜3500本からなる中空糸膜束をU字状に束ね、外径90mm、内径85mmで、内面がなだらかな曲面で外側に開き、その端部の内径が100mmであるラッパ状の保護部材内に中空糸膜のU字状と逆端部を挿入した状態で、内径104mmの硬質塩化ビニルパイプのハウジング内に挿入して、片端を接着剤で固定し、その接着固定部の一部を切断して中空糸膜の内部を開口させた。この時、a/b=0.72、充填率45%、d-c=12.6mmである。また保護部材は接着固定部から40mmの高さまで設置してある。次にハウジングの下方に接続するキャップに、ハウジング内に気体を導入する円筒形で、水平方向に総面積60mm2の8個の孔を有する散気部材を固定し、ハウジングにキャップを取り付けることで図1に示す形状の長さ1100mmの中空糸膜モジュールを製作した。

【0037】このモジュールを使用して、モジュール内に純水を入れ、エアー流量8.5 cm/secでエアースクラビングを2ヶ月間連続して実施した。その結果、中空糸膜切れが発生しなかった。

【0038】比較例1

外径680μm、外径400μm、平均ボアサイズ0.01μmのボリアクリロニトリル多孔質中空糸膜3500本からなる中空糸膜束をU字状に束ね、外径90mm、内径85mmの円筒形の保護部材内に中空糸膜のU字状と逆端部を挿入した状態で、内径104mmの硬質塩化ビニルバイブのハウジング内に挿入して、片端を接着剤で固定し、その接着固定部の一部を切断して中空糸

膜の内部を開口させた。また保護部材は接着固定部から40mmの高さまで設置してある。次にハウジングの下方に接続するキャップに、ハウジング内に気体を導入する円筒形で、水平方向に総面積60mm2の8個の孔を有する散気部材を固定し、ハウジングにキャップを取り付けることで図1に示す形状の長さ1100mmの中空糸膜モジュールを製作した。

【0039】このモジュールを使用して、モジュール内に純水を入れ、エアー流量8.5cm/secでエアー スクラビングを2ヶ月間連続して実施した。その結果、中空糸膜切れが2本発生した。

[0040]

(5)

【発明の効果】本発明は上記の構成とすることにより、 0.65≦a/b≦0.9であることを特徴とする中空 糸膜モジュールにより、エアースクラビング時、および ろ過運転時に、中空糸膜の過剰な揺れによる中空糸膜切れを効果的に防止することができる。

【図面の簡単な説明】

m、内径85mmで、内面がなだらかな曲面で外側に開 【図1】本発明の、接着固定部の反対側の端部だけが外き、その端部の内径が100mmであるラッパ状の保護 20 側に開いている保護部材を設置した中空糸膜モジュール部材内に中空糸膜のU字状と逆端部を挿入した状態で、 の一例を示す側面断面図である。。

【図2】(A)は図1のA-Aの上面図であり、(B)は図1のB-Bの上面図である。

【図3】本発明の、中央部が細くくびれた保護部材を設置した中空糸膜モジュールの一例を示す側面断面図である。

【図4】従来の保護部材を有している中空糸膜モジュールの一例を示す側面断面図である。

水平方向に総面積60mm2の8個の孔を有する散気部 【図5】従来の接着固定部付近のハウジング内面を小径材を固定し、ハウジングにキャップを取り付けることで 30 にして、本来のハウジング内面まで外側に開いている中図1に示す形状の長さ1100mmの中空糸膜モジュー 空糸膜モジュールの一例を示す側面断面図である。

【符号の説明】

1a:キャップ

1b:キャップ

2:ハウジング

3:接着固定部

4:中空糸膜

5:保護部材

6 : 7L

40 7: ノズル

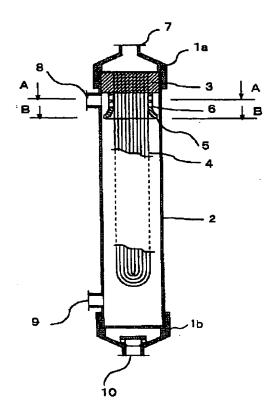
8: ノズル

9:ノズル

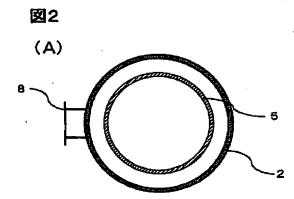
10:ノズル

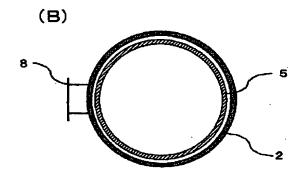


図1



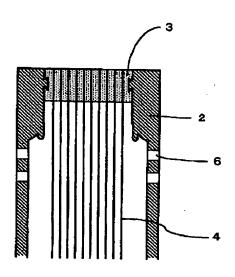
[図2]





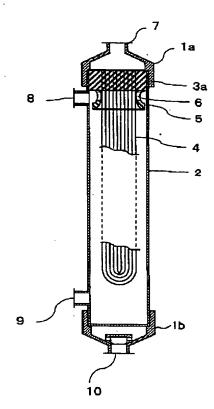
【図5】

図5



【図3】





【図4】

図4

